(19) **RU** (11) (21) **94005691** (13) **A1**

(51) 6 C 08 F 292/00, B 01 J 20/22

Комитет Российской Федерации
по патентам и товарным знакам

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЗАЯВКЕ

(21) 94005691/05 (22) 15.02.94
(43) 10.11.95 Бюл. № 31

(72) Аристович В.Ю., Соколов А.Ю., Аристович Ю.В., Долматов В.Ю., Возняковский А., Генкин А.Н., Чечик О.С.
(71) Аристович В.Ю.

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ СОРБЦИОННОГО МАТЕРИАЛА ДЛЯ ХРОМАТОГРАФИЧЕСКОГО АНАЛИЗА

(57) Использование: жидкостная хроматография. Сущность: осуществляют полимеризацию на поверхности частиц углеродного наполнителя - ультрадисперсного алмаза с размером частиц 0,1 - 50 мк в присутствии водорастворимого или маловодорастворимого инициатора. Соотношение между мономером и углеродным наполнителем 1 : 10 ÷ 100 : 1. Сумму мономера, сшивающего агента, углеродного наполнителя и воды берут в пределах 1 : 5 ÷ 1 : 300. Степень сшивки полимера 0,01 - 50%. Соотношение между суммой мономера со сшивающим агентом и инициатором 100 : 0,1 ÷ 100 : 3. В качестве мономера используют стирол, этилвинилбензол, винилацетат, метилметакрилат, в качестве сшивающего агента - дивинилбензол. Полученный сорбент расширяет ассортимент используемых материалов, обеспечивает высокую прочность частиц, обеспечивающих многократное использование насадки.

RU 94005691 A1

Best available COPY

18 ДЕК 1995

BEST AVAILABLE COPY

RU 94005691 A1

94005691/04

в 01 J 20/22

Способ получения сорбционного материала для хроматографического анализа

Изобретение относится к химической технологии, а именно: к способам получения композиционных сорбентов, которые могут быть использованы в хроматографии

Известны способы получения сорбентов, используемых в хроматографических анализах, который заключается в ~~[illegible]~~ суспензионной полимеризации стирола в присутствии маслорастворимых инициаторов, например нитрилазомасляной кислоты или перекись бензоила
ж. Polymers Paint Colour Journal, August, 10, 24, 1983 с 541-544

Полученные сорбенты не обладают высокой прочностью из-за малой молекулярной массы полистирола (20-70 тыс).

Для увеличения молекулярной массы полимера в стирол вводят сшивающий агент дивинилбензол А.с. 1033181 БИ 29, 83 г

Способ заключается в проведении процесса полимеризации в присутствии инертного газа.

Известен также способ проведения эмульсионной полимеризации стирола, инициированного персульфатом калия. Молекулярная масса образующегося при этом полистирола весьма велика (10^6 и более). В результате способа получают частицы размером 10^3 Å, которые очень сложно выделить из латекса, что затрудняет их использование в хроматографическом анализе.

Известен способ получения композиционного сорбента путем набухания частиц полистирола, сшитого дивинилбензолом в растворителе с последующем смешением набухших частиц с частицами сажи и отгонкой растворителя Пат. США 4303529, опубл I 12.81 г

В результате осуществления способа получают смесь полимерных и углеродных частиц, обладающих различными свойствами

Задачей изобретения является расширение ассортимента получаемых сорбентов для использования в хроматографическом анализе, увеличение прочности частиц и возможности длительного использования насадки без перенабивки хроматографической колонки

Задача решается следующим образом

Способ получения сорбционного материала включает проведение безэмульсионной полимеризации мономера с дивинилбензолом на поверхности частиц ультрадисперсного алмаза в присутствии инициатора.

Соотношение между мономером и ультрадисперсным алмазом берут в пределах I:I0÷I00÷I

Соотношение между суммарным содержанием мономера, сшивающего агента-дивинилбензола, ультрадисперсного алмаза и водой составляет I:5 – I:300.

Соотношение между суммой мономера со сшивающим агентом и инициатором берут в пределах I00:0,I ÷ I00 ÷ 3

Ультрадисперсный алмаз используют в виде водной дисперсии с размером твердых частиц 0,I – 50 мк.

Верещагин А.Л., Сакович Г.В., Петрова Л.А., Новоселов В.В., Брыляков П.М. "Исследование химического состава поверхности ультрадисперсного алмаза детонационного синтеза – Доклад АН СССР 1990 г. т.315 № I, I04-I05

Фазовый состав продукта представлен исключительно фазой алмаза. Удельная поверхность составляет 280-330 м^2/г Элементный состав (масс%): углерод – 81,2 – 88,0, водород 0,9 – I,4, азот I,7 – 2,3, кислород 9,3 – I8,1

Полимеризация мономера с дивинилбензолом идет на поверхности частиц ультрадисперсного наполнителя

Состав поверхностных функциональных групп, включающих карбоксильные, гидроксильные, хинонные, лактонные, нитрильные и метильные группы, обеспечивает его поверхностную активность, вследствие чего происходит адсорбция зарождающихся цепей полимера

Наличие инициатора вызывает образование активных радикалов на поверхности частиц алмаза, обеспечивающих химическое связывание полимерных цепей с поверхностью носителя – ультрадисперсного алмаза (УДА).

Соотношение между мономером и сшивающим агентом берут таким образом, чтобы степень сшивки изменялась в пределах 0,01-50%

В качестве мономера используют стирол, этилвинилбензол, винилацетат, метилметакрилат.

В процессе полимеризации используют водорастворимые инициаторы пероксульфат калия, натрия, аммония, перборат калия или натрия, перекись водорода

Могут быть также использованы инициаторы, такие, как диалкиларилалкилпероксиды, диацилпероксиды и гидропероксиды.

Размер частиц УДА в водной дисперсии находится в пределах 0,1-50 мм

При анализе уровня техники можно сделать вывод, что способ заключается в новом качественном подходе и разработке способа получения композиционного сорбента, новых приемах его осуществления

в качестве исходных ингредиентов используют кроме известных мономеров, водную дисперсию частиц ультрадисперсного алмаза

Условия проведения процесса полимеризации: соотношение между ингредиентами, стиролом и наполнителем, свиролом, наполнителем и водой приводят к получению частиц с высокой молекулярной массой ($2 \cdot 10^5 - 10^6$) и композиционным составом, обеспечивающей повышение прочности сорбента

Таким образом, изобретение отвечает критериям "новизна" и "изобретательский уровень"

Изобретение поясняется примерами.

Пример 1

Исходные продукты характеризуется следующими показателями.

Стирол ГОСТ 10003-90 – мономер

Персульфат калия ТУ 38103270-87 – инициатор

Дивинилбензол свежеперегнанный под вакуумом при температуре 35°С.

Стирол перегоняют при остаточном давлении 30-50 мм и температуре не выше +60°С.

Наполнитель ультрадисперсный алмаз (УДА) с размером частиц 0,1÷50 мк, предварительно выдерживают в вакууме при 1 мм рт. столба при температуре 200-250°С в течение 3 часов

В 100 мл воды вводят 1 г УДА с размером частиц 3 – 6 мк, 0,1 г пресульфата калия, перемешивают в течение 1 часа при 60°С с одновременной продувкой колбы инертным газом. Затем через капельную воронку вводят 10 г стирола, содержащего 0,1 г дивинилбензола.

Соотношение между суммой мономера стирола дивинилбензола, наполнителя УДА и водой составляет 1:9

Соотношение между стиролом и УДА составляет 10:1.

Соотношение между суммой стирола, дивинилбензола и персульфатом калия составляет 100:0,99

Полимеризацию ведут при 60°С в течение 7 часов

По окончании полимеризации в колбе образуется три слоя: верхний слой – суспензия УДА с поверхностным слоем полимера; водный слой и частицы УДА без полимерного наполнителя.

Верхний слой определяют, разбавляют водой и кипятят до улетучивания непрореагировавшего стирола и выпадения осадка. Получают в результате частицы сорбента размером 5 – 10 мк.

Молекулярный вес $2x10^5$

Степень сшивки 1%

Пример 2

В 3460 мл воды вводят 10 г УДА с размером частиц 0,1 – 0,5 мк, 0,0465 г инициатора перекиси водорода, перемешивают в течение 2 часов при 60°С с одновременной продувкой колбы инертным газом

Затем через капельную воронку вводят I г этилвинилбензола с 0,55 г дивинилбензола.

Соотношение между суммой мономера этилвинилбензола с дивинилбензолом, наполнителя УДА с водой составляет 1:300

Соотношение между этилдивинилбензолом и УДА составляет 1:10

Соотношение между суммой этилдивинилбензола, дивинилбензола и перекисью водорода составляет 100:5.

Далее технология получения сорбента по примеру I

Размеры частиц сорбента 4-6 мк

Молекулярный вес $5,2 \times 10^5$

Степень сшивки 50%

Пример 3

В 5I мл воды вводят 0,I г УДА с размером частиц 30-40 мк, 0,01 инициатора пербората калия, перемешивают в течение 3 часов при 60°С с одновременной продувкой колбы инертным газом. Затем через капельную воронку вводят 10 г винилацетата с 0,I г дивинилбензола

Соотношение между суммой мономера винилацетата с дивинилбензолом, УДА с водой составляет 1:5

Соотношение между винилацетатом и УДА составляет 100:1.

Соотношение между суммой винилацетата, дивинилбензолом и инициатором перборатом калия составляет 100:0,1

Далее - аналогично примеру I

Размеры полученных частиц сорбента 60-80 мк.

Молекулярный вес 2×10^5

Степень сшивки 0,01%

Пример 4

Процесс полимеризации аналогично примеру I.

В качестве мономера используют метилметакрилат.

Частицы УДА размером 4-10 мк в виде водной дисперсии

Инициатор - гидроперекись бензоила

Получены частицы размером 6-20 мк

Молекулярный вес $4x10^5$

Степень сшивки 1%

Образцы полученных сорбентов исследовались под микроскопом. Фотографии приведены на рис. 1 (Пример 1), рис. 2 (Пример 3)

Все образцы полученных сорбентов испытывали на хроматографических колонках 4x250 мм на жидкостном хроматографе фирмы

Разделяют следы глюкозы и фруктозы в сахарозе.

Разделение проводят с помощью элюента водного раствора гидроксида натрия концентрации 160 мл/моль.

Результат разделения показан на рис. 2. Провели более 240 определений без изменения характеристики насадки.

Скорость элюента 1 мл/мин.

Пик 1 - глюкоза, пик 2 - фруктоза, пик 3 - сахароза

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

I Способ получения сорбционного материала для хроматографического анализа, предусматривающий полимеризацию мономера со сшивающим агентом в присутствии инициатора, отличающийся тем, что полимеризацию осуществляют в присутствии инициатора на поверхности частиц углеродного наполнителя, в качестве которого используют ультрадисперсный алмаз в виде водной суспензии, в которую вводят смесь мономера со сшивающим агентом.

2. Способ по п.I, отличающийся тем, что соотношение между мономером и углеродным наполнителем берут в пределах I:I0 ÷ I00:I.

3 Способ по п.I, отличающийся тем, что соотношение между суммой мономера, сшивающего агента, углеродного наполнителя и водой берут в пределах I:5 ÷ I:300

4 Способ по п.I, отличающийся тем, что соотношение между мономером и сшивающим агентом берут таким образом, чтобы степень сшивки изменялась в пределах 0,0I-50%.

5 Способ по п.п. I-4, отличающийся тем, что соотношение между суммой мономера со сшивающим агентом и инициатором берут в пределах I00:0,I ÷ I00:3

6. Способ по п.I, отличающийся тем, что в качестве мономера используют стирол, этилвинилбензол, винилацетат, метилметакрилат.

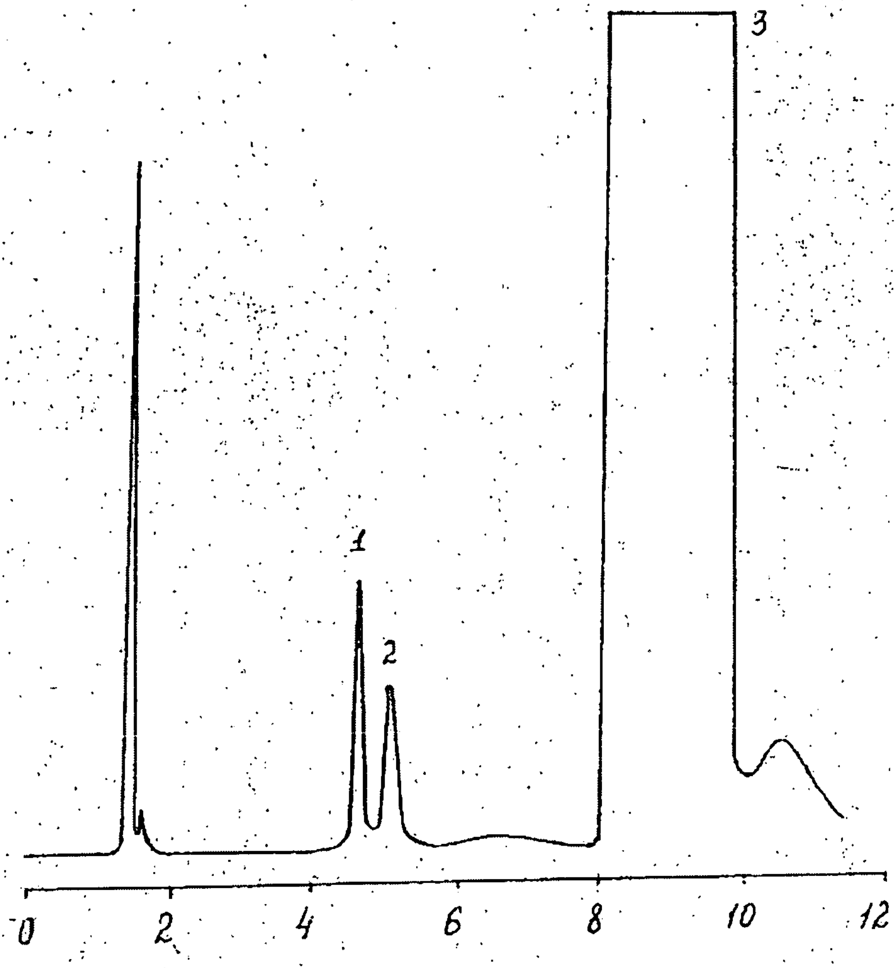
7. Способ по п I, отличающийся тем, что в качестве сшивающего агента используют преимущественно дивинилбензол.

8 Способ по п.I, отличающийся тем, что используют водорастворимые инициаторы, выбранные из ряда персульфатов, перборатов, перекись водорода

9 Способ по п. I, отличающийся тем, что используют инициаторы, выбранные из ряда диалкил, -арилалкилпероксидов, диацилпероксидов и гидропероксидов

10. Способ по п.1, отличающийся тем, что в качестве углеродного наполнителя используют ультрадисперсный алмаз с размером частиц 0,1 - 50 мк

Способ получения сорбционного материала для хроматографического анализа



Минуты

Рис 1

Способ получения сорбционного материала для хроматографического анализа

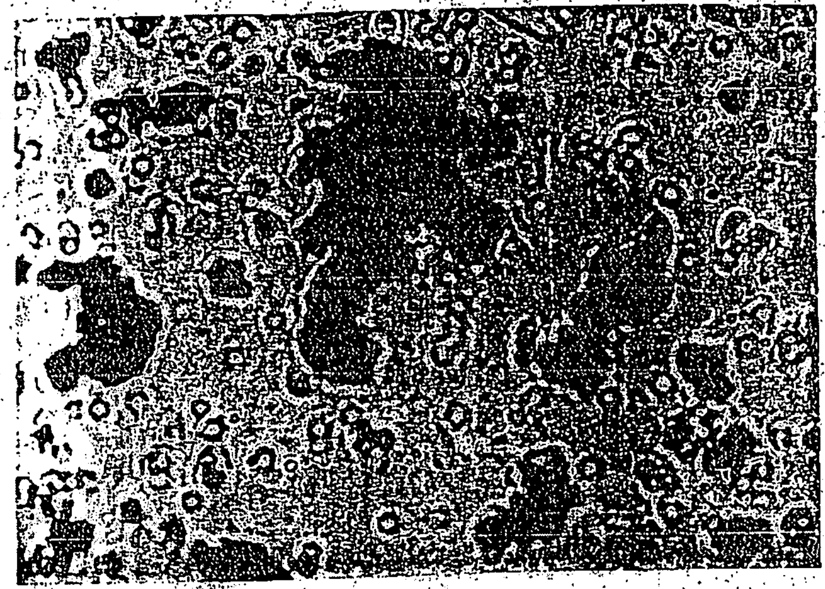


Рис 2

Способ получения сорбционного материала для хроматографического анализа

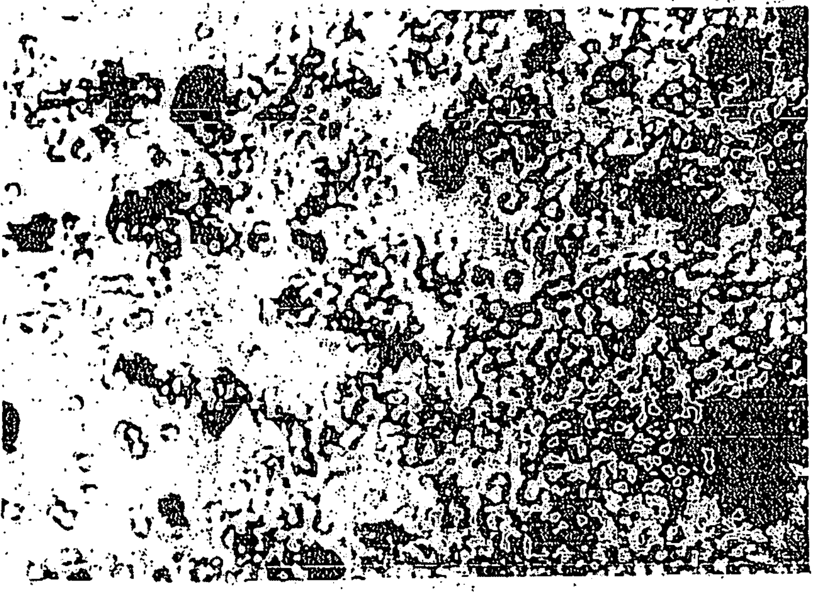


Рис 3

(19) RU

(11) Document No.: 940005,691 A1

(51) Intl. Cl.^{6}: C 08 F 292/00
B 01 J 20/22

Committee of the Russian Federation
on Patents and Trademarks

(12) **DESCRIPTION OF INVENTION FOR APPLICATION**

(21) Application No.: 94/005,691/05

(22) Application Date: February 15, 1994

(43) Publication Date of Unexamined Document on Which No Grant Has Taken Place : November 10, 1995, *Byul.* No. 31

(72) Inventor(s): V. Yu. Aristovich, A. Yu. Sokolov, Yu. V. Aristovich, V. Yu. Dolmatov, A. Voznyakovskiy, A. N. Genkin, and O. S. Chechik

(71) Applicant(s): V. Yu. Aristovich

(54) Title of the Invention:

METHOD FOR PRODUCING SORPTION MATERIAL FOR CHROMATOGRAPHIC ANALYSIS

(57) Abstract:

Application: liquid chromatography. Essence: polymerization is carried out on the surface of particles of a carbon filler, i.e., ultradispersed diamond with a particle size of 0.1-50 µm, in the presence of a water-soluble or not very water-soluble initiator. The ratio between the monomer and the carbon filler is 1:10 to 100:1. The [*ratio between the*] sum of monomer + crosslinking agent + carbon filler and water is in the range of 1:5 to 1:300. The degree of crosslinking of the polymer is 0.01-50%. The ratio between the sum of monomer + crosslinking agent and the initiator is 100:0.1 to 100:3. Styrene, ethylvinylbenzene, vinyl acetate, and methyl

methacrylate can be used as the monomer, and divinylbenzene is used as the crosslinking agent. The sorbent obtained expands the selection of materials used and ensures a high particle strength, thereby allowing for repeated use of the packing.

METHOD FOR PRODUCING SORPTION MATERIAL FOR CHROMATOGRAPHIC ANALYSIS

The invention pertains to chemical engineering, and specifically to methods for producing composite sorbents that can be used in chromatography.

Methods for producing the sorbents used in chromatographic analysis are known that consist in the suspension polymerization of styrene in the presence of not very water-soluble initiators, such as azobutyric acid nitrile or benzoyl peroxide [*Polymers Paint Colour Journal*, Vol. 10, No. 24, pp. 541-544, August 1983]. The sorbents obtained do not have a high strength because of the low molecular weight of the polystyrene (20-70 thousand).

To increase the polymer's molecular weight, a crosslinking agent, e.g., divinylbenzene, has be introduced into the styrene [(*Russian*) Author's Certificate No. 1,033,181, BI 29, 1983].

The method consists in carrying out the polymerization process in the presence of an inert gas.

A method for carrying out the emulsion polymerization of styrene is also known that is initiated by potassium persulfate. The molecular weight of the polystyrene formed in this case is quite high (10^6 and higher). As a result of the method, particles measuring 10^3 Å are obtained that are very difficult to separate from the latex, making them difficult to use in chromatographic analysis.

A method is known for producing a composite sorbent by swelling particles of polystyrene crosslinked by divinylbenzene in a solvent, followed by mixing the swelled particles with particles of carbon black and distilling off the solvent [US Patent No. 4,303,529, published December 1, 1981]. As a result of using this method, a mixture of polymer and carbon particles having various properties is obtained.

The goal of the invention is to expand the selection of sorbents obtained for use in chromatographic analysis, and to increase the strength of the particles and the potential for long-term use of the packing without redesigning the chromatographic column.

This problem is solved as follows.

The method for producing sorption material consists in carrying out the emulsion-free polymerization of the monomer with divinylbenzene on the surface of ultradispersed diamond particles in the presence of an initiator. The ratio between the monomer and the ultradispersed diamond is in the range of 1:10 to 100:1.

The ratio between the total content of monomer + crosslinking agent divinylbenzene + ultradispersed diamond and water is in the range of 1:5 to 1:300.

The ratio between the sum of monomer + crosslinking agent and the initiator is in the range of 100:0.1 to 100:3.

The ultradispersed diamond is used in the form of an aqueous dispersion, with a solid particle size of 0.1-50 μm.

[A. L. Vereshchagin, G. V. Sakovich, L. A. Petrova, B. B. Novoselov, and P. M. Brylyakov: Study of the chemical composition of the surface of ultradispersed diamond obtained by detonation synthesis. *Doklady AN SSSR*, Vol. 315, No. 1, pp. 104-105, 1990.]

The phase composition of the product is represented exclusively by the diamond phase. The specific surface area is 290-330 m^2/g. The elementary composition (in wt.%) is the following: 81.2-88.0 carbon, 0.9-1.4 hydrogen, 1.7-2.3 nitrogen, and 9.3-16.1 oxygen.

Polymerization of the monomer with divinylbenzene takes place on the surface of the ultradispersed filler particles.

The composition of the surface functional groups, including carboxyl, hydroxyl, quinone, lactone, nitrile, and methyl groups, ensures its surface activity, as a result of which adsorption of the forming polymer chains occurs.

The presence of the initiator causes the formation of active radicals on the surface of the diamond particles, ensuring the chemical bonding of the polymer chains to the surface of the ultradispersed diamond (UDD) support.

The ratio between the monomer and the crosslinking agent is thus selected in such a way that the degree of crosslinking fluctuates in the range of 0.01-50%. Styrene, ethyl vinyl benzene, vinyl acetate, and methyl methacrylate can be used as the monomer.

In the polymerization process, the water-soluble initiators potassium, sodium, or ammonium persulfate, potassium or sodium perborate, and hydrogen peroxide are used. Such initiators as dialkyl arylalkyl peroxides, diacyl peroxides, and hydroperoxides may also be used.

The size of the UDD particles in the aqueous dispersion is in the range of 0.1-50 μm. In analyzing the level of technology, it can be concluded that the method involves a new qualitative approach and the development of a method for producing a composite sorbent, and new methods of carrying it out.

In addition to the known monomers, the starting ingredients include an aqueous dispersion of ultradispersed diamond particles. The conditions for carrying out the polymerization process are: the ratio between the ingredients -- styrene and filler, and styrene, filler and water -- results in the production of particles with a high molecular weight (2×10^5-

10^6) and a composition ensuring an increase in the strength of the sorbent. Thus the invention satisfies the requirements of novelty and inventive activity.

The invention is explained by examples.

Example 1

The starting products are characterized by the following parameters:

-- styrene GOST 10003-90 = monomer;

-- potassium persulfate TU 38103270 –87 – imitator;

-- divinylbenzene, freshly vacuum-distilled at a temperature of 35°C;

The styrene is distilled at a residual pressure of 30-50 mm and a temperature of no more than +60°C.

The filler is ultradispersed diamond (UDD) with a particle size of 0.2-50 μm, previously held in a vacuum at 1 mm Hg and a temperature of 200-250°C for 3 hours.

1 g of UDD with a particle size of 3-6 μm and 0.1 g of potassium persulfate are introduced into 100 mL of water and stirred for 1 hour at 60°C, while simultaneously blowing inert gas through the flask. Then 10 g of styrene containing 0.1 g of divinylbenzene is introduced through a dropping funnel. The ratio between the sum of styrene monomer + divinylbenzene + UDD filler and water is 1:9.

The ratio between the styrene and UDD is 10:1.

The ratio between the sum of styrene + divinylbenzene and potassium persulfate is 100:0.99.

Polymerization is carried out at 55°C [*semilegible – Tr. Ed.*] for 7 hours.

At the end of polymerization, three layers have formed in the flask: an upper layer that is a suspension of UDD with a surface layer of polymer, an aqueous layer, and UDD particles without polymer filler.

The upper layer is determined, diluted with water, and boiled until the unreacted styrene is volatilized and the residue precipitates. Sorbent particles measuring 5-10 μm are obtained as a result.

Molecular weight 2×10^5 [*superscript is only semilegible -- Tr. Ed.*]

Degree of crosslinking .... [*possibly "1%"; only semilegible -- Tr. Ed.*]

Example 2

10 g of UDD with a particle size of 0.1-0.5 μm and 0.465 g of hydrogen peroxide initiator are introduced into 3465 [*number only semilegible -- Tr. Ed.*] mL of water. This is stirred for 2 hours at 60°C, while an inert gas is simultaneously blown through the flask. Then 1 g of ethylvinylbenzene with 0.55 g of divinylbenzene is introduced through a dropping funnel.

The ratio between the sum of ethylvinylbenzene monomer + divinylbenzene + UDD filler and water is 1:300.

The ratio between ethylvinylbenzene and UDD is 1:10.

The ratio between the sum of ethylvinylbenzene + divinylbenzene and hydrogen peroxide is 100: .... [*possibly "3"; only semilegible -- Tr. Ed.*].

The rest of the sorbent production technology is the same as in Example 1.

Sorbent particle size 4-6 μm.

Molecular weight 5. .... $\times 10^5$ [*numbers only semilegible -- Tr. Ed.*].

Degree of crosslinking 30% [*number only semilegible -- Tr. Ed.*].

Example 3

0.1 g of UDD with a particle size of 30-40 µm and 0.01 g of potassium perborate initiator are introduced into [*number illegible -- Tr. Ed.*] mL of water and stirred for 3 hours at 60°C, while inert gas is simultaneously blown through the flask. Then 10 g of vinyl acetate with 0.1 g of divinylbenzene is introduced through a dropping funnel. The ratio between the sum of vinyl acetate monomer + divinylbenzene + UDD and water is 1:5.

The ratio between the vinyl acetate and UDD is 100:1.

The ratio between the sum of vinyl acetate + divinylbenzene and the potassium perborate initiator is 100:0.1.

The remainder of the procedure is analogous to that in Example 1.

Size of sorbent particles obtained 60-80 [*numbers only semilegible -- Tr. Ed.*] µm.

Molecular weight 2 × 10^5.

Degree of crosslinking 0.01%.

Example 4

The polymerization process is analogous to Example 1.

Methyl methacrylate is used as the monomer.

UDD particles measuring 4-10 µm are in the form of an aqueous dispersion.

Initiator = benzoyl hydroperoxide.

Particles measuring 6-25 µm were obtained.

Molecular weight 4 × 105.

Degree of crosslinking 1%.

Samples of the sorbents obtained were studied under a microscope. Photographs are shown in Figure 1 [*sic; Figure 2? -- Tr. Ed.*] (Example 1) and Figure 2 [*sic; Figure 3? -- Tr. Ed.*] (Example 3).

All the samples of the sorbents obtained were tested on 4 × 250 mm chromatographic columns, on a liquid chromatographic from [*No name given -- Tr. Ed.*].

Separation of Traces of Glucose and Fructose in Sucrose

The separation is carried out by means of an eluent in the form of an aqueous solution of sodium hydroxide, concentration 160 mL/mole.

The result of the separation is shown in Figure 2 [*sic; Figure 1 -- Tr. Ed.*]. Over 240 determinations were done without any change in packing characteristics.

Eluent velocity = 1 mL/minute.

Peak 1 = glucose, peak 2 = fructose, peak 3 = sucrose.

CLAIMS

1. Method for producing sorption material for chromatographic analysis, involving the polymerization of a monomer with a crosslinking agent in the presence of an initiator, characterized in that the polymerization is carried out in the presence of an initiator on the surface of particles of a carbon filler, for which purpose ultradispersed diamond is used in the form of an aqueous suspension into which a mixture of monomer and crosslinking agent is introduced.

2. Method according to Claim 1, characterized in that the ratio between the monomer and carbon filler is in the range of 1:10 to 100:1.

3. Method according to Claim 1, characterized in that the ratio between the sum of monomer + crosslinking agent + carbon filler and water is in the range of 1:5 to 1:300.

4. Method according to Claim 1, characterized in that the ratio between the monomer and crosslinking agent is chosen so that the degree of crosslinking varies over a range of 0.01-50%.

5. Method according to Claims 1-4, characterized in that the ratio between the sum of monomer + crosslinking agent and initiator is in the range of 100:0.1 to 100:3.

6. Method according to Claim 1, characterized in that styrene, ethylvinylbenzene, vinyl acetate, or methyl methacrylate is used as the monomer.

7. Method according to Claim 1, characterized in that predominantly divinylbenzene is used as the crosslinking agent.

8. Method according to Claim 1, characterized in that water-soluble initiators chosen from the group of persulfates, perborate, and hydrogen peroxide are used.

9. Method according to Claim 1, characterized in that initiators chosen from the group of dialkyl arylalkyl peroxides, diacyl peroxides, and hydroperoxides are used.

10. Method according to Claim 1, characterized in that ultradispersed diamond with a particle size of 0.1-50 μm is used as the carbon filler.

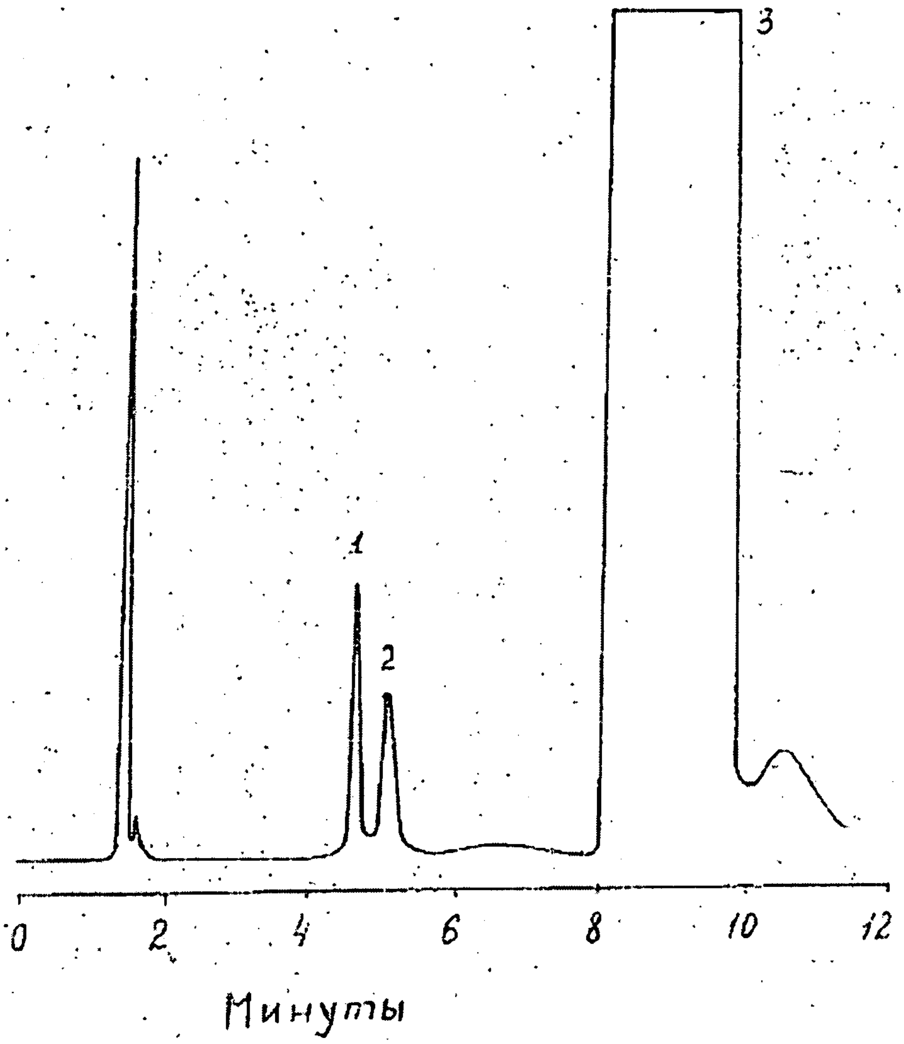


Figure 1. x-axis =minutes.

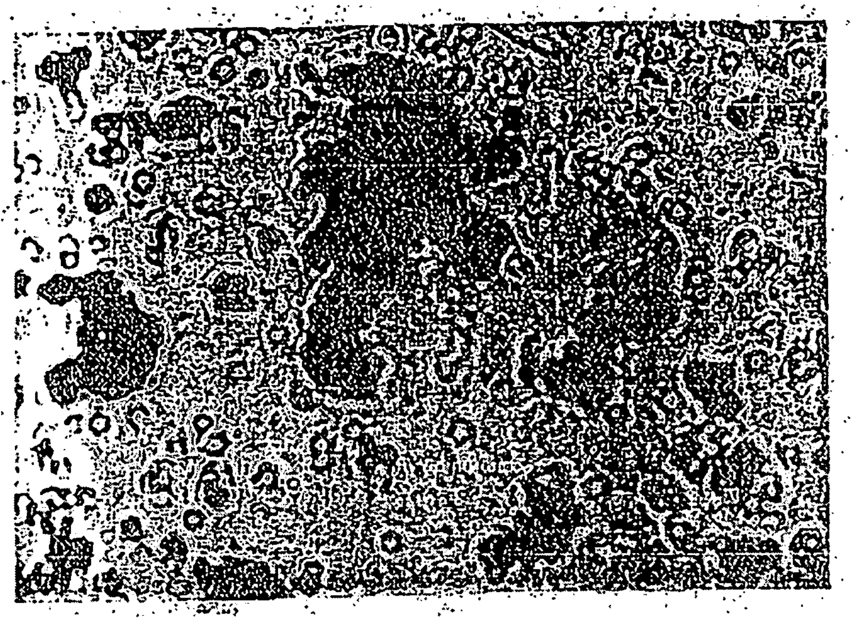


Figure 2

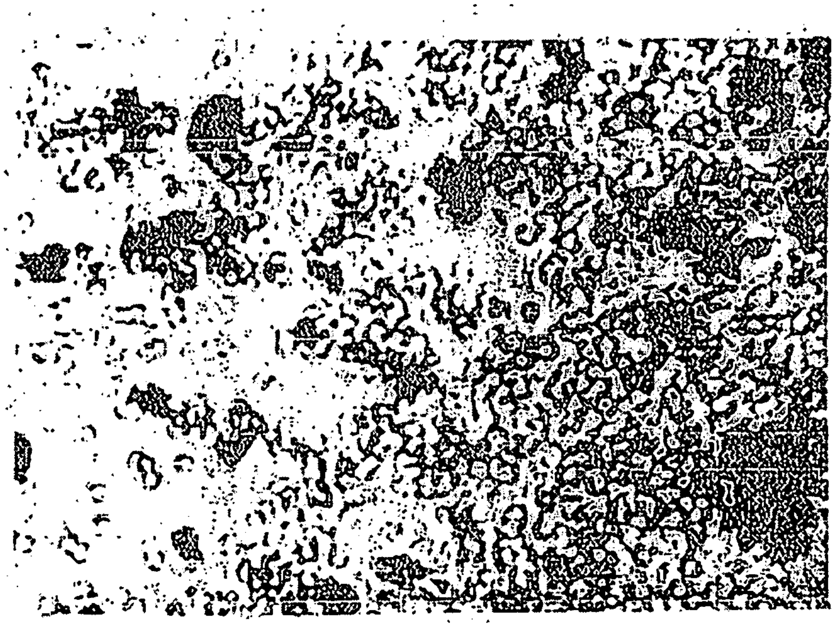


Figure 3

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☐ FADED TEXT OR DRAWING

☑ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☑ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: ______________________

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.
As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.